

Surface Characteristics and Mechanical Performance of EPDM/Graphene Oxide Composites

Ahmad Allahbakhsh*

Department of Polymer Engineering, Hakim Sabzevari University, Postal Code: 9617976487, Sabzevar, Iran

Received: 8 April 2024, accepted: 11 September 2024

ABSTRACT

Hypothesis: The employment of graphene oxide (GO) in polymer composites has garnered significant interest due to its potential applications in the aerospace, construction, and electronics industries. This is due to the proven potential of graphene oxide to enhance the mechanical, functional, and electrical properties of polymer-based composite materials. Additionally, the surface properties of polymer composites are directly influenced by the structural and mechanical properties of these materials.

Methods: The mechanical and surface properties of ethylene propylene diene monomer (EPDM)/GO composites are investigated. Graphene oxide, prepared in powder form, was mixed with EPDM at loading contents of 1, 3, and 5 phr using a two-roll mill. The main objective was to investigate the effect of graphene oxide loading content on the tear strength and surface roughness of EPDM/GO composites through surface and mechanical analyses.

Findings: Results indicate that the incorporation of graphene oxide in a loading content of 3 phr leads to a significant improvement in mechanical properties. More than 75% increase in tensile strength, 5% increase in the elongation-at-break, and more than 16% rise in the tear strength are achieved when 3 phr GO is loaded into the structure of EPDM. The incorporation of graphene oxide also results in a slight improvement in the modulus of the system. Based on the atomic force microscopy and tensile test results presented in this work, a direct relationship between surface behavior and mechanical properties of EPDM/GO composites is observed.

Keywords:

composite,
ethylene propylene diene
monomer (EPDM),
graphene oxide,
mechanical properties,
surface characteristics

(*To whom correspondence should be addressed.

E-mail: a.allahbakhsh@hsu.ac.ir

Please cite this article using:

Allahbakhsh A., Surface Characteristics and Mechanical Performance of EPDM/Graphene Oxide Composites, *Iran. J. Polym. Sci. Technol. (Persian)*, 37, 61-71, 2024.

مشخصه‌های سطح و عملکرد مکانیکی کامپوزیت‌های EPDM-گرافن اکسید

احمد اله بخش*

سبزوار، دانشگاه حکیم سبزواری، گروه مهندسی پلیمر، کد پستی ۹۶۱۷۹۷۶۴۸۷

دریافت: ۱۴۰۳/۱/۲۰، پذیرش: ۱۴۰۳/۶/۲۱

چکیده

فرضیه: با توجه به قابلیت زیاد کاربرد گرافن اکسید (GO) در صنایع مختلف، از جمله هوافضا، ساخت‌وساز و الکترونیک، استفاده از آن در کامپوزیت‌های پلیمری توجه فراوانی را جلب کرده است. این توجه تا حد زیادی به دلیل قابلیت تأییدشده گرافن اکسید در افزایش خواص مکانیکی، عملکردی و الکتریکی مواد کامپوزیتی بر پایه پلیمرهاست. از سوی دیگر، مشخصه‌های سطح کامپوزیت‌های پلیمری به‌طور مستقیم متأثر از خواص ساختاری و مکانیکی این مواد است. **روش‌ها:** در این مطالعه، عملکرد مکانیکی و رفتار سطحی کامپوزیت‌های اتیلن-پروپیلن-دی‌ان مونومر-گرافن اکسید (EPDM/GO) بررسی شده است. ذرات گرافن اکسید در حالت پودری تهیه شده و سپس با مخلوطکن دوغلتکی، در مقادیر ۱، ۳ و ۵ phr با EPDM مخلوط شدند. آزمون‌های بررسی مشخصه‌های سطح و خواص مکانیکی این کامپوزیت‌ها برای ارزیابی اثر مقدار گرافن اکسید افزوده‌شده بر مقاومت پارگی و زبری سطح به‌عنوان هدف اصلی در این مطالعه انتخاب شدند. **یافته‌ها:** نتایج حاکی از آن است، افزودن گرافن اکسید با مقدار ۳ phr به کامپوزیت‌های EPDM/GO به بهبود شایان توجهی در خواص مکانیکی منجر می‌شود. به‌طور ویژه، افزایش بیش از ۷۵٪ در استحکام کششی، افزایش ۵٪ کشش در نقطه شکست و افزایش بیش از ۱۶٪ مقاومت پارگی در این آمیزه مشاهده شده است. این اثر مثبت به بهبود خواص کششی ماتریس لاستیکی محدود نشده و موجب افزایش جزئی مدول کشسانی ماتریس نیز شده است. براساس نتایج میکروسکوپی نیروی اتمی و آزمون کشش ارائه‌شده در این پژوهش، ارتباط معناداری بین رفتار سطحی و عملکرد مکانیکی کامپوزیت‌های EPDM/GO مشاهده شده است.

واژه‌های کلیدی

کامپوزیت،
اتیلن-پروپیلن-دی‌ان مونومر،
گرافن اکسید،
خواص مکانیکی،
مشخصه سطح

* پیام‌نگار:

a.allahbakhsh@hsu.ac.ir

مقدمه

در یک دهه گذشته، کامپوزیت‌های پلیمری تقویت‌شده با گرافن اکسید (graphen oxide, GO) توجه پژوهشگران زیادی را جلب کرده است [۱، ۲]. این توجه به دلیل قابلیت‌های تأییدشده GO در بهبود خواص عملکردی کامپوزیت‌های پایه پلیمری است [۳]. هرچند، دستیابی به این خواص منحصربه‌فرد به دلیل تمایل زیاد گرافن به تجمع‌یافتگی، نیاز به طراحی دقیق ساختار و فرایند تولید این گروه از کامپوزیت‌های پلیمری را دوچندان کرده است [۴، ۵]. ذرات گرافنی، در شکل کاهش‌یافته خود (شامل گرافن و GO کاهش‌یافته)، تمایل زیادی به تجمع‌یافتگی دارند که این موضوع اختلاط این گروه از نانو مواد با درشت‌مولکول‌های پلیمری را دشوار می‌کند [۶]. به همین دلیل، از اصلاح سطح گرافن به‌عنوان روشی قابل اطمینان برای دستیابی به درجه مناسبی از پراکنش ذرات در آمیزه‌های پلیمری استفاده می‌شود [۵، ۷].

فرایند عامل‌دار کردن سطح گرافن و تبدیل آن به GO شامل اتصال گروه‌های اکسیژن‌دار (مانند گروه‌های اپوکسید، هیدروکسیل و کربوکسیل) به سطح ذرات است [۸]. این گروه‌های عاملی، گرافیت (به‌عنوان ماده اولیه) را به گرافیت اکسید (پیش‌ماده تولید GO) تبدیل می‌کنند و پس از جدایش مکانیکی ذرات تشکیل‌دهنده گرافیت اکسید (با استفاده از روش‌هایی همچون فراصوت‌دهی)، GO با امکان نفوذ بهتر درشت‌مولکول‌های پلیمری در بین ذرات (به‌دلیل کاهش تمایل صفحه‌های GO به یکدیگر) تشکیل می‌شوند [۸]. افزون بر این، عامل‌دار کردن سطح گرافن با گروه‌های عاملی به بهبود خواص ترشوندگی صفحه‌های GO با درشت‌مولکول‌های پلیمری از افزایش نانوزبری سطح منجر می‌شود. مطالعات مولکولی بر نانوزبری سطح GO حاکی از آن است که وجود گروه‌های عاملی همچون هیدروکسیل و اپوکسید به تغییر در مقدار افت و خیز سطحی (fluctuation) صفحه‌های GO منجر می‌شود که به نوبه خود بر امکان تشکیل، قدرت و مقدار برهم‌کنش‌های فیزیکی و شیمیایی بین اجزای تشکیل‌دهنده کامپوزیت‌های پلیمری اثر می‌گذارد [۹].

پارامتر زبری سطح، پارامتری کمی است که انسجام داخلی ماده را نمایان می‌سازد. در نانوکامپوزیت‌ها، پارامتر زبری سطح نمایانگر برهم‌کنش بین نانوپرکننده و ماتریس بوده و به‌عنوان معیاری برای وضعیت برهم‌کنش پرکننده-پلیمر در نظر گرفته می‌شود [۱۰، ۱۱]. افزون بر این، پارامتر زبری سطح در پلیمرها، به‌عنوان ملاکی از استحکام ساختاری، با خواص مکانیکی و سایشی سطح مرتبط است [۹]. بنابراین، می‌توان از این ویژگی کامپوزیت‌های الاستومری برای درک دقیق‌تر خواص سایشی این مواد بهره برد [۱۲].

صنعت الاستومر، یکی از قدیمی‌ترین حوزه‌ها در صنعت فراوری

پلیمرهاست. در میان الاستومرهای مهندسی، الاستومر اتیلن-پروپیلن-دی‌ان مونومر (EPDM)، لاستیکی پرکاربرد در صنایع مختلفی همچون درزگیرها و سامانه‌های عایق‌بندی خودرو، دیواره‌های لاستیکی تایر، تسمه‌ها، کابل‌ها و شیلنگ‌های انتقال مواد شیمیایی است [۱۳]. این گستره وسیع کاربردی به دلیل خواص مکانیکی و مقاومت محیطی منحصربه‌فرد EPDM است [۴]. افزون بر این، کامپوزیت‌ها و نانوکامپوزیت‌های EPDM خواصی به‌مراتب مناسب‌تر از لاستیک EPDM را در اختیار قرار می‌دهند که به طراحی مناسب‌تر و دقیق‌تر محصولات بر پایه این لاستیک منجر می‌شود [۱۴].

گروه پژوهشی ما در سال‌های گذشته مطالعاتی را درباره بررسی رفتار ولکانش سامانه‌های EPDM/GO [۴، ۱۳] و خواص نانوزبری صفحه‌های گرافن اکسید (GO) انجام داده است [۹]. در این مطالعه، خواص مکانیکی و سطحی کامپوزیت‌های EPDM/GO، تهیه‌شده با روش مخلوط‌کردن مستقیم صنعتی، به‌طور دقیق بررسی شده‌اند. نتایج مطالعه حال حاضر حاکی از آن است که مقدار GO افزوده‌شده به لاستیک EPDM اثر زیادی بر خواص مکانیکی و سطحی کامپوزیت‌ها داشته است. آزمون‌های کشش، استحکام سایشی و تصاویر میکروسکوپی برای ارزیابی عملکرد مکانیکی و شکل‌شناسی کامپوزیت‌های ساخته‌شده به‌کار گرفته‌شده‌اند. افزون بر این، مشخصه‌های سطح کامپوزیت‌های تهیه‌شده به‌طور دقیق مطالعه شده‌اند تا ارتباط معناداری بین خواص مکانیکی، سایشی و نانوزبری سطح کامپوزیت‌های EPDM/GO ارائه شود.

تجربی

مواد

کائوچوی EPDM (Vistalon 7500)، گران‌روی مونی ۸۲ در دمای ۱۲۵°C، مقدار اتیلن ۵۵/۵٪ و مقدار ENB ۵/۷٪ از شرکت ExxonMobil و پودر گرافیت از شرکت LECO تهیه شد. تمام مواد شیمیایی و حلال‌ها از شرکت Merck Chemicals تهیه شدند. افزون بر این، سامانه پخت لاستیک استفاده‌شده در این پژوهش از نوع تجاری بوده است.

دستگاه‌ها و روش‌ها

تهیه پودر گرافن اکسید

در این مطالعه، پودر گرافن اکسید (GO) با روش اصلاح‌شده بر پایه روش Hummers از پودر گرافیت تهیه شد که جزئیات کامل روش

جدول ۱- فرمول‌بندی آمیزه‌ها در تولید کامپوزیت‌های EPDM/GO.
Table 1. Formulation of compounds of EPDM/GO composite.

Materials	Amounts (phr*)
EPDM	100
Sulfur	2
Zinc oxide (ZnO)	5
Stearic acid (SA)	1.5
CBS**	1
GO	Variable (0, 1, 3, and 5 phr)

Parts per hundred rubber parts in weight. ** N-Cyclohexyl-2-benzothiazolesulfenamide

Universal Testing, مطابق با استاندارد ASTM D624 انجام شد. مقادیر سختی (Shore A) با دستگاه نوع Zwick DIN 53505 A مطابق با استاندارد ASTM D2240 اندازه‌گیری شدند. برای محاسبه میانگین مقدار سختی (Shore A)، سه نقطه مختلف روی سطح نمونه با ضخامت حدود ۶ mm در نظر گرفته شد.

آزمون‌های مقاومت در برابر سایش با دستگاه آزمایشگاهی Karl Frank GmbH Type 11565 مطابق با استاندارد ASTM D5963 انجام شد. برای تهیه تصاویر میکروسکوپی الکترونی (FE-SEM)، از میکروسکوپ الکترونی Hitachi S 4160 استفاده شد. الگوهای پراش پرتو X (XRD) با دستگاه Inel Equinox 3000 به دست آمد. منبع استفاده‌شده از نوع $\text{Cu K}\alpha$ ($\lambda=1/54.056 \text{ \AA}$) با ولتاژ ۴۰ kV و جریان ۳۰ mA بود.

نتایج و بحث

مطالعات شکل‌شناسی و ساختاری

شکل‌شناسی کامپوزیت‌های تقویت‌شده با ۱، ۳ و ۵ phr از GO با تصاویر FE-SEM بررسی شد که نتایج در شکل ۱ آمده است. تمام نمونه‌های کامپوزیتی شکل‌شناسی سطح شکست صاف را نشان می‌دهند که حاکی از شکست یکنواخت در نیتروژن مایع به دلیل یکپارچگی ساختاری است. فرمول‌بندی پخت استفاده‌شده در این مطالعه از نوع تجاری بوده و این موضوع بدان معناست که اندازه ذرات در این فرمول‌بندی باید در محدوده چند میکرون باشد. با توجه به اینکه ذرات سفید قابل‌مشاهده در شکل ۱ ابعادی به مراتب

در مراجع [۱۷-۱۵] آمده است. به‌طور خلاصه، در این روش، ۱ g پودر گرافیت با ۱۰۰ mL سولفوریک اسید (۹۸٪) مخلوط شد. سپس، ۶ g پتاسیم پرمنگنات به تدریج به مخلوط اضافه شده و مخلوط به مدت ۴ h در دمای 35°C با استفاده از همزن مغناطیسی هم‌زده شد. سپس، ۳۰۰ mL آب مقطر به مخلوط واکنش اضافه شده و پس از ۱۵ min واکنش با اضافه‌کردن ۵۰ mL محلول آبی H_2O_2 متوقف شد تا مخلوطی با رنگ قهوه‌ای مایل به زرد به دست آید. پودر گرافیت اکسید تولیدی با محلول HCl و آب تا رسیدن به pH خنثی شسته شد. گرافیت اکسید به دست‌آمده به آب مقطر افزوده شد و به مدت ۲۰ min فراصوت‌دهی شد. سپس، به کمک دستگاه مرکزگریز با شتاب ۵۰۰۰ rpm ذرات جامد گرافیت اکسید پراکنش‌نیافته از محلول GO جدا شد. همچنین، برای تهیه پودر GO، محلول نهایی به تدریج روی سطح شیشه‌ای که در دمای 110°C نگه داشته شده بود، افشانش شد و پس از هر بار افشانش پودر GO به صورت لایه‌به‌لایه از سطح جمع‌آوری شد.

تهیه کامپوزیت‌ها

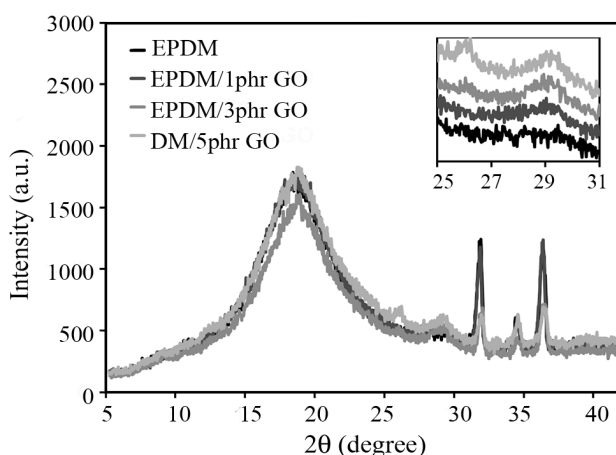
اختلاط GO، EPDM و سایر اجزای سامانه پخت شامل روی اکسید، استتاریک اسید، N-سیکلوهگزیل-۲-بنزوتیازول سولفونامید (CBS) و گوگرد در یک مخلوط‌کن لاستیک دوغلتکی آزمایشگاهی Rodolfo Comerio ($350 \times 700 \text{ mL}$) در دمای محیط به مدت حدود ۱۵ min انجام شد. جزئیات کامل فرایند اختلاط در مراجع [۴، ۱۳] آمده است. در این پژوهش، برای امکان پیگیری دقیق‌تر اثر وجود GO بر رفتار سطحی و مکانیکی کامپوزیت‌های EPDM/GO، دوده (که اصلی‌ترین پرکننده سامانه لاستیکی است) از فرمول‌بندی حذف شده است. اجزای فرمول‌بندی پخت استفاده‌شده در این مطالعه برای تهیه کامپوزیت‌های EPDM/GO در جدول ۱ آمده است. آمیزه تهیه‌شده در قالب آزمایشگاهی Dr. Collin GmbH بر مبنای مدت زمان‌های بهینه پخت (t_{90}) در دمای 170°C ولکانیده شدند. زمان‌های بهینه پخت و سایر ویژگی‌های ولکانش آمیزه‌ها با رئومتر حرکتی HIWA 900 مطابق با استاندارد ASTM D5289 به دست آمد. تصاویر میکروسکوپی نیروی اتمی (AFM) با میکروسکوپ DME Dualscope DS 95-200 تهیه شدند. سطح مقطع نمونه‌ها پس از شکست در نیتروژن مایع ارزیابی شد. پارامترهای زبری سطح و نمای سه‌بعدی سیمی (wire-frame) با نرم‌افزار پردازش تصویر Femtoscan (نسخه 2.3.94) به دست آمد. آزمون‌های کشش نمونه‌های دمبل‌شکل در دستگاه Hiwa 200 با سرعت 500 mL/min ، مطابق با استاندارد ASTM D412 انجام شد. همچنین، آزمون‌های مقاومت پارگی نمونه‌ها با دستگاه

این تجمع‌یافتگی‌ها در نمونه‌های دارای مقدار بیشتر پودر GO نیز توجیه‌پذیر است.

برای ارزیابی دقیق‌تر وضعیت شکل‌شناسی GO در کامپوزیت‌های تهیه‌شده، روش XRD برای ارزیابی مقدار و نوع تجمع‌یافتگی این ذرات در ماتریس EPDM استفاده شد که نتایج حاصل در شکل ۲ نشان داده شده است. با توجه به این مهم که در الگوی XRD تمام کامپوزیت‌ها هیچ نشانه‌ای از پیک مشخصه گرافیت اکسید در مقادیر ۲۰ حدود ۱۱° وجود ندارد، فرایند اکسایش و سپس فراصوت‌دهی انجام‌شده روی پودر گرافیت اکسید به بازشدن ساختار این ماده به GO منجر شده است [۱۵]. پیک پهن بازتاب مشاهده‌شده در مقادیر ۲۰ حدود ۲۶° را نیز می‌توان به‌عنوان پیک ساختار گرافیتی در نظر گرفت، زیرا شدت این پیک با افزایش مقدار پودر GO در کامپوزیت‌های EPDM/GO افزایش یافته است. این رفتار می‌تواند به افزایش تعداد ذرات گرافن اکسید تجمع‌یافته در تصاویر FE-SEM با افزایش مقدار GO و ناکافی بودن میدان تنش اعمال‌شده در فرایند اختلاط به‌کار گرفته در تولید کامپوزیت‌ها نسبت داده شود [۴]. افزون بر این، سه پیک در مقادیر ۲۰ حدود ۳۲، ۳۴/۵ و ۳۶/۵° با صفحه‌های شبکه شش‌ضلعی و رتزیت ZnO مرتبط هستند (به ترتیب، ۱۰۰، ۰۰۲ و ۱۰۱) [۴].

خواص مکانیکی

شکل ۳ و جدول ۲ به ترتیب منحنی‌های تنش-کرنش و خواص مکانیکی نمونه‌های تهیه‌شده را نشان می‌دهند. وجود ذرات گرافن

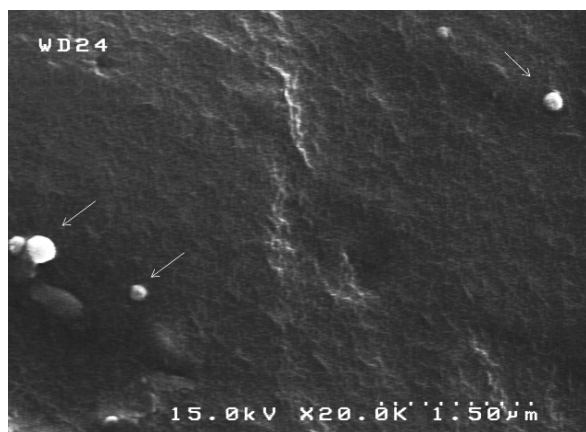


شکل ۲- الگوهای XRD نمونه EPDM و نمونه‌های کامپوزیتی EPDM/GO بارگذاری‌شده با ۱، ۳ و ۵ phr از GO.

Fig. 2. XRD patterns of EPDM and EPDM/GO composites loaded with 1, 3, and 5 phr of GO.



(a)



(b)



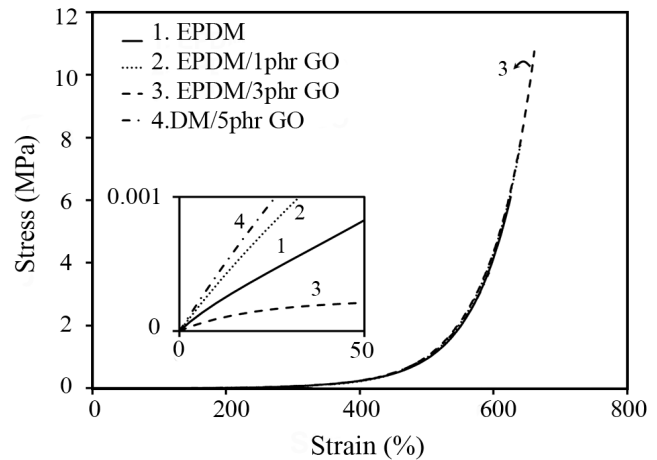
(c)

شکل ۱- تصاویر FE-SEM کامپوزیت‌های EPDM/GO بارگذاری‌شده با ذرات GO: (a) 1 phr، (b) 3 phr و (c) 5 phr. Fig. 1. FE-SEM images of EPDM/GO composites loaded with GO: (a) 1 phr, (b) 3 phr, and (c) 5 phr.

کمتر از ۱ μm دارند، این ذرات به احتمال قوی GO تجمع‌یافته در حالت پودری هستند که در فرایند اختلاط زیر تنش واردشده به‌طور کامل پراکنش نیافته‌اند [۴]. این موضوع با توجه به افزایش تعداد

حداکثر تنش کششی کامپوزیت‌های دارای ۱ و ۳ phr از GO به ترتیب حدود ۱/۹۸ و ۵/۱۳ MPa نسبت به EPDM خالص افزایش یافته است. این افزایش در تنش کششی به عوامل مختلفی نظیر توزیع مناسب GO در ماتریس EPDM و برهم‌کنش‌های فیزیکی سطحی میان GO و ماتریس EPDM در سطح مشترک ماتریس-تقویت‌کننده نسبت داده می‌شود [۴]. با وجود این، حداکثر تنش کششی کامپوزیت (۵ phr) EPDM/GO حدود ۳۷٪ کمتر از EPDM خالص بوده است. براساس مشاهدات ساختاری و شکل‌شناسی، این رفتار به افزایش تجمع‌یافتگی GO مرتبط است. همچنین، کشش در نقطه شکست کامپوزیت‌های دارای ۱ و ۳ phr از GO به ترتیب حدود ۱۵ و ۳۷٪ بیشتر از نمونه خالص EPDM بوده است.

در فرایند ولکانش کامپوزیت‌های EPDM/GO، اتصال‌های عرضی ترکیبی از برهم‌کنش‌های شیمیایی حاصل از ولکانش و برهم‌کنش‌های فیزیکی بین GO و ماتریس پلیمری هستند. برهم‌کنش‌های فیزیکی بین درشت‌مولکول‌های EPDM و سطح GO را می‌توان به‌عنوان دلیل اصلی بهبود عملکرد کشش در نقطه شکست کامپوزیت‌ها در نظر گرفت. بر همین اساس، کشش در نقطه شکست کامپوزیت (۵ phr) EPDM/GO به‌طور شایان توجهی نسبت به کامپوزیت دارای ۳ phr از GO کمتر است. چگالی اتصال‌های عرضی در نمونه EPDM خالص 1.46×10^{-4} و در نمونه‌های EPDM/GO دارای ۱، ۳ و ۵ phr از GO به ترتیب 1.61×10^{-4} ، 1.62×10^{-4} و 1.25×10^{-4} mol/cm³ است [۱۳]. مقدار اتصال‌های عرضی در کامپوزیت EPDM/GO دارای ۵ phr از GO به‌طور شایان توجهی کمتر از سایر نمونه‌هاست.



شکل ۳- منحنی‌های تنش-کرنش نمونه EPDM و نمونه‌های کامپوزیتی EPDM/GO بارگذاری شده با ۱، ۳ و ۵ phr از GO.
Fig. 3. True stress vs. strain curves of unfilled EPDM, as well as EPDM/GO composites loaded with 1, 3, and 5 phr of GO.

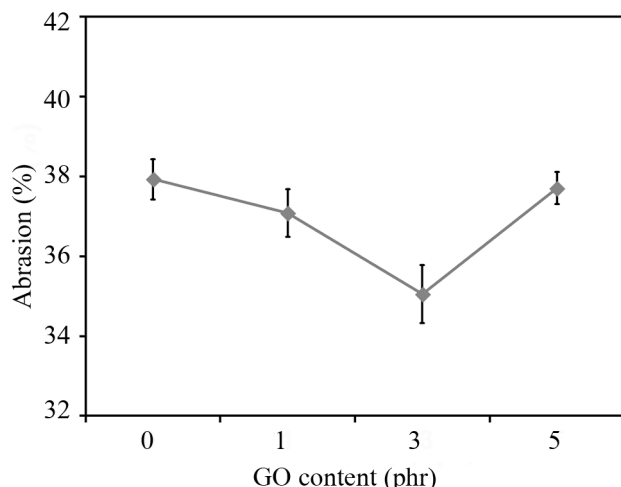
اکسید، موجب افزایش کمی در مقادیر سختی نمونه‌ها شد (جدول ۲). با توجه به این مهم که سختی در نمونه‌های الاستومری معیاری از پایداری ساختاری است، وجود GO رفتار گران‌روکشسان نمونه‌های الاستومری را به‌شکل شایان توجهی کاهش نداده است. سختی نمونه کامپوزیتی EPDM/GO (۳ phr) به ۵۴ Shore A رسید. افزون بر این، کامپوزیت دارای بیشترین مقدار GO (۵ phr) سختی کمتری از EPDM خالص نشان داده است. این رفتار احتمالاً به تجمع GO مرتبط است که در نتایج XRD و FE-SEM در بخش قبلی بحث شده‌اند.

جدول ۲- خواص مکانیکی و مشخصه‌های ولکانشی آمیزه‌ها.

Table 2. Mechanical properties and vulcanization characteristics of compounds.

GO Content (phr)	0	1	3	5
Hardness (Shore A)	52.17 ± 0.29*	53.17 ± 0.29	54.00 ± 0.50	50.50 ± 0.50
Elongation at break (%)	624.49 ± 2.42	639.65 ± 4.07	661.65 ± 2.46	586.97 ± 5.49
Tensile strength (MPa)	5.57 ± 0.48	7.55 ± 0.25	10.70 ± 0.20	3.43 ± 0.26
Stress at 500% elongation (MPa)	0.82 ± 0.09	0.94 ± 0.03	0.96 ± 0.05	1.00 ± 0.02
Tear strength (kN/m at 25°C)	9.21 ± 0.01	10.40 ± 0.29	10.71 ± 0.03	7.38 ± 0.06
Torque delta (dNm)	24.74	24.51	19.34	16.88
t ₉₀ (min)	14.13	17.82	21.23	26.86

* Parameter ± standard deviation



شکل ۴- کاهش وزن در اثر سایش کامپوزیت‌های EPDM/GO بارگذاری شده با ۱، ۳ و ۵ phr از GO در مقایسه با نمونه EPDM ولکانیده خالص.

Fig. 4. Abrasion loss of EPDM/GO composites loaded with 1, 3, and 5 phr of GO in comparison with the neat vulcanized EPDM.

افزون بر این، هر دو نمونه دارای ۱ و ۳ phr از GO دارای سختی بیشتری در جدول ۲ بودند که همین موضوع ارتباط مستقیم سختی و مقاومت در برابر سایش کامپوزیت‌های تهیه شده را نشان می‌دهد. از سوی دیگر، رفتار مقاومت سایشی نمونه دارای ۵ phr از GO به دلیل وجود مقدار زیاد تجمع‌یافتگی GO در ساختار کامپوزیت کاهش یافته است. این نتیجه با عملکرد مکانیکی کامپوزیت EPDM/GO (۵ phr) نیز همخوانی دارد.

از تصاویر AFM نمونه EPDM خالص و کامپوزیت (۳ phr) EPDM/GO برای بررسی عملکرد سطح و ویژگی‌های زبری سطح نمونه‌ها استفاده شد که به ترتیب این تصاویر در شکل‌های ۵ و ۶ نشان داده شده‌اند. از تصاویر AFM سطح شکست نمونه‌ها، برای محاسبه خواص زبری سطح نمونه‌ها استفاده شد که نتایج در جدول ۳ آمده است.

مقادیر زبری میانگین (R_a) و مربع ریشه زبری میانگین (R_q) به ترتیب میانگین حسابی ارتفاع سطح و انحراف معیار ارتفاع سطح ماده را بیان می‌کند [۹]. افزون بر این، ارتفاع پیک تا پیک (R_z) میانگین حسابی اختلاف بین بیشترین و کمترین ارتفاع در یک تصویر را نشان می‌دهد و ملاکی از درجه نوسان‌های سطحی در نمونه است [۹]. همچنین، پارامتر انحراف از تراز سطح (R_{sk}) عدم تقارن توزیع ارتفاع سطحی در نمونه را توصیف می‌کند و پارامتر کشیدگی سطح (R_{ku}) شیب‌داری توپوگرافی سطح و مقدار وجود پیک‌های مختلف سطحی

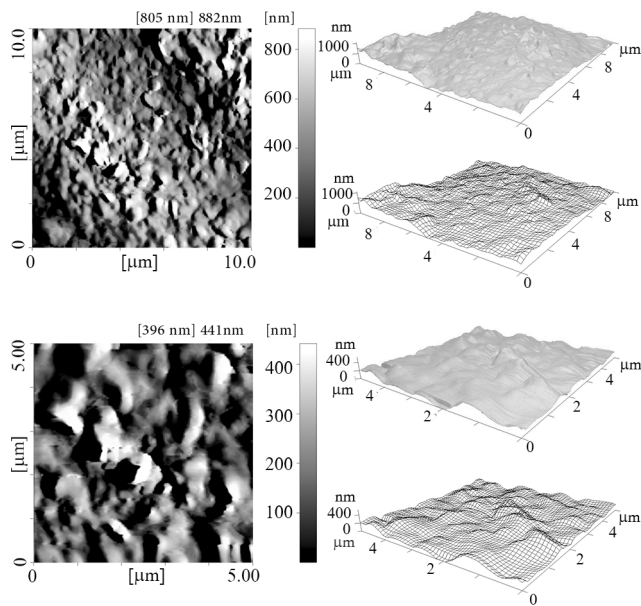
این کاهش اتصال‌های عرضی نشان‌دهنده افزایش تجمع‌یافتگی GO در کامپوزیت EPDM/GO (۵ phr) است. این تجمع‌ها به‌عنوان (۱) نقاط نقص و (۲) سدی در برابر تشکیل پیوندهای عرضی حین ولکانش در ساختار کامپوزیت عمل می‌کنند و در نتیجه، نقاط تمرکز تنش در ساختار کامپوزیت را افزایش می‌دهند.

مدول کششی کامپوزیت EPDM/GO (۳ phr) حدود ۲۵٪ نسبت به نمونه EPDM خالص افزایش یافت، که این بهبود با مدول زیاد ذرات GO مرتبط است. افزون بر این، عملکرد مکانیکی کامپوزیت‌ها در ناحیه شبه‌خطی (در تنش‌های کم) نشان داد، بهبود عملکرد مکانیکی کامپوزیت EPDM/GO (۳ phr) پس از حدود ۲۰٪ ازدیاد طول آغاز می‌شود. مقاومت پارگی کامپوزیت‌ها معیاری از مقاومت کامپوزیت‌ها در برابر رشد ترک است. کامپوزیت EPDM/GO (۳ phr) بیشترین بهبود مقاومت پارگی را در میان نمونه‌های مطالعه شده داشت و بیش از ۱۶٪ بهبود در مقاومت پارگی این نمونه در مقایسه با EPDM خالص مشاهده شد. در این نمونه، توزیع یکنواخت GO در ماتریس EPDM و درجه زیاد برهم‌کنش‌های فیزیکی و شیمیایی بین GO ماتریس مانعی فیزیکی در برابر رشد ترک ایجاد کرده است.

براساس نتایج مکانیکی آمده در این بخش، بهبود خواص مکانیکی و عملکرد لاستیکی در آمیزه‌های کامپوزیت EPDM/GO با مقدار کم GO نیز قابل دستیابی است. به‌ویژه، کامپوزیت‌های EPDM/GO در مقایسه با سایر سامانه‌های کامپوزیتی همچون نانوکامپوزیت‌های نانورس-EPDM [۱۸، ۱۹]، بهبود کامل در رفتار الاستومری را در غلظت‌های نانومواد به‌مراتب کمتری ارائه می‌دهند. در نانوکامپوزیت‌های تقویت‌شده با نانورس، این سطح از بهبود در خواص مکانیکی با ۱۰ phr یا حتی ۱۵ phr نانورس حاصل می‌شود. احتمالاً این رفتار به سطح ویژه بسیار زیاد GO در مقایسه با سایر تقویت‌کننده‌های صفحه‌ای مرتبط است و همین سطح ویژه زیاد GO را به یک گزینه مناسب برای تولید کامپوزیت‌های پیشرفته با خواص مکانیکی و الاستومری بهبودیافته تبدیل می‌کند.

خواص سطحی

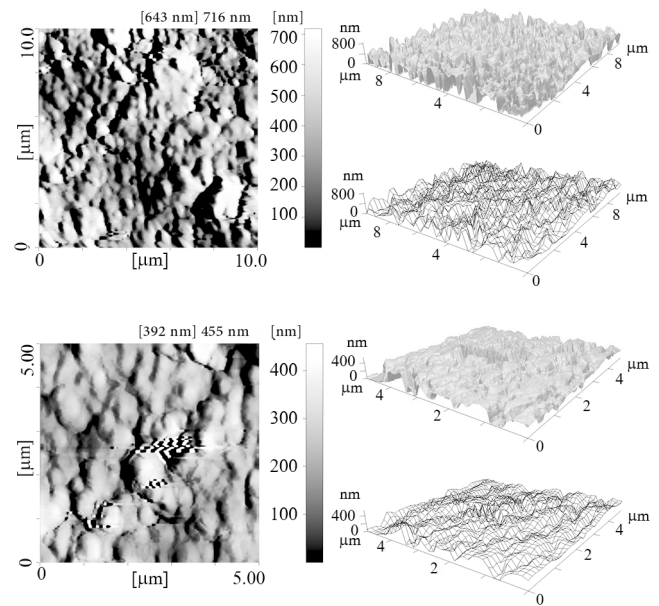
رفتار کاهش جرم در اثر سایش در کامپوزیت‌های دارای GO در مقایسه با نمونه EPDM خالص در شکل ۴ نشان داده شده است. مقاومت سایشی کامپوزیت EPDM/GO (۳ phr) حدود ۴٪ بیش از نمونه EPDM خالص است. این رفتار به دلیل برهم‌کنش‌های فیزیکی و شیمیایی بین GO و زنجیرهای EPDM در نمونه دارای ۳ phr از GO است. همچنین، بهبود مقاومت سایشی کامپوزیت دارای ۱ phr از GO نیز با استحکام ساختاری این کامپوزیت همخوانی دارد.



شکل ۶- تصاویر AFM و نمای سه‌بعدی سطح شکست کامپوزیت EPDM/GO (۳ phr).

Fig. 6. AFM images, 3D surface views, and wire-frame model 3D views of EPDM/GO (3 phr) composite in two different cross sections (10×10 μm and 5×5 μm width).

رفتار زبری سطح کامپوزیت، شاهدی عینی از برهم‌کنش‌های زیاد بین درشت‌مولکول‌های EPDM و سطح GO در کامپوزیت (۳ phr) است. این نتیجه با نتایج پژوهش‌های اخیر درباره فرایند پخت کامپوزیت‌های EPDM/GO همخوانی دارد که حاکی از افزایش پیوندهای عرضی در مجاورت GO بوده است [۱۳]. چنین رفتاری به کاهش نوسان‌های سطح محلی زنجیرهای EPDM در کامپوزیت دارای ۳ phr از GO در مقایسه با EPDM خالص منجر شده است. همچنین، سطح صاف‌تر کامپوزیت (۳ phr) EPDM/GO در نمای سه‌بعدی ارائه‌شده در شکل‌های ۵ و ۶ نیز گواهی دیگری بر این برهم‌کنش‌های سطحی میان GO و EPDM در ساختار کامپوزیت (۳ phr) EPDM/GO



شکل ۵- تصاویر AFM و نمای سه‌بعدی سطح شکست نمونه EPDM خالص.

Fig. 5. AFM images, 3D surface views and wire-frame model 3D views of unfilled EPDM surface in 10×10 μm and 5×5 μm cross-sections.

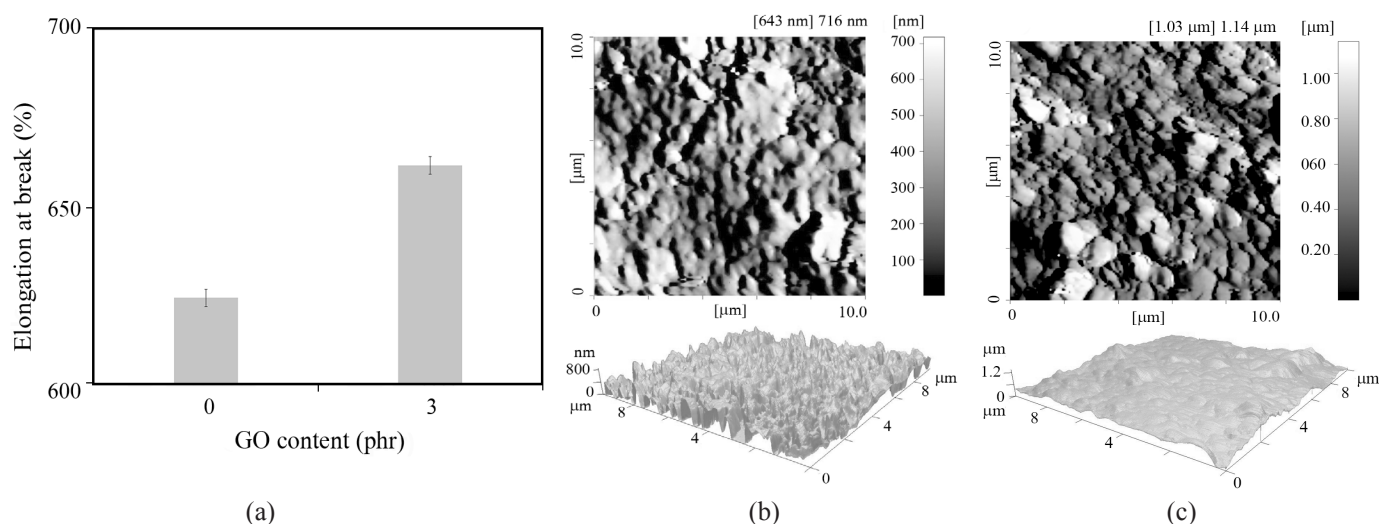
در نتایج AFM را توصیف می‌کند [۹]. در ساختار نمونه دارای ۳ phr از GO حدود ۴۱٪ افزایش زبری سطح در مقایسه با نمونه EPDM خالص مشاهده شده است. سطح زبرتر کامپوزیت (۳ phr) EPDM/GO را می‌توان از تفاوت بین مقادیر R_a و R_q کامپوزیت و EPDM خالص در جدول ۳ تشخیص داد. برهم‌کنش‌های سطحی زیاد بین سطوح ماتریس و GO را می‌توان به‌عنوان دلیل اصلی افزایش پارامترهای زبری در کامپوزیت در نظر گرفت. افزون بر این، با افزایش مقدار R_z کامپوزیت نسبت به نمونه خالص، نوسان‌های کلی سطح کامپوزیت به‌طور شایان توجهی افزایش یافته است.

جدول ۳- پارامترهای زبری سطح نمونه‌های مطالعه‌شده در شکل‌های ۵ و ۶.

Table 3. Quantitative roughness parameters of compounds.

Compound	R_a (nm)	R_q (nm)	R_z (nm)	R_{ku}	R_{sk}
EPDM	65.61 ± 0.32*	81.73 ± 0.25	43.31 ± 0.28	2.79 ± 0.11	0.15 ± 0.07
EPDM/GO (3 phr)	92.62 ± 0.39	118.11 ± 0.22	56.73 ± 0.23	3.06 ± 0.15	0.31 ± 0.04

* Parameter ± standard deviation.



شکل ۷- ارتباط بین نانوزبری و رفتار مکانیکی: (a) کشش در نقطه شکست نمونه‌های EPDM خالص و EPDM/GO (۳ phr)، تصاویر AFM و نمای سه‌بعدی نمونه‌های EPDM خالص (b) و EPDM/GO (۳ phr). (c)

Fig. 7. Nanoroughness and mechanical performance relationship: (a) elongation at break of unfilled EPDM and EPDM/GO (3 phr) composite; (b) AFM image and 3D surface view of unfilled EPDM, and (c) AFM image and 3D surface view of EPDM/GO (3 phr) composite.

می‌توان از نتایج AFM و آزمون کشش در شکل ۷ چنین استنباط کرد که ارتباط معناداری بین رفتار سطحی و عملکرد مکانیکی نمونه‌ها وجود دارد. به‌وضوح، خواص مکانیکی نمونه‌ها با افزایش یکپارچگی ساختاری افزایش یافته است. با افزایش یکپارچگی ساختاری، کشیدگی سطحی در نمونه‌ها باریک‌تر شده و زبری ماده افزایش یافته است (شکل ۷). بنابراین، با افزایش برهم‌کنش‌های فیزیکی و شیمیایی، عملکرد مکانیکی نمونه بهبود یافته و در نتیجه توزیع باریک ارتفاع در سطح نمونه مشاهده شده است. این مشاهدات می‌توانند به‌عنوان دلیل قابل قبولی برای ارتباط بین رفتار سطحی و عملکرد مکانیکی نمونه‌های کامپوزیتی دارای GO باشند.

نتیجه‌گیری

در این مطالعه، خواص مکانیکی کامپوزیت‌های EPDM/GO با استفاده از نتایج کشش بررسی شد. براساس نتایج، استحکام کششی کامپوزیت دارای ۳ phr از GO تا ۱۰ MPa بیشتر از نمونه EPDM خالص بود. افزون بر این، کشش در نقطه شکست و مقاومت پارگی کامپوزیت دارای ۳ phr از GO به ترتیب حدود ۴۰٪ و ۱۶٪ افزایش

است که به افزایش خواص گران‌روکشسانی ماتریس EPDM در آمیزه کامپوزیتی منجر شده است. همان‌طور که در جدول ۲ قابل مشاهده است، وجود GO به دو پدیده جالب در ساختار کامپوزیت منجر شده است: (۱) افزایش سختی و استحکام نهایی نمونه و (۲) افزایش کشش در نقطه شکست. بنابراین، چنین رفتاری را می‌توان به افزایش چگالی اتصال‌های عرضی همراه با افزایش یکپارچگی ساختاری به‌دلیل وجود سطح مشترک قدرتمند با ذرات کشسان GO در ساختار کامپوزیت نسبت داد [۱۳]. هر چند، مقدار میانگین پیک تا پیک بین مرتفع‌ترین و عمق‌ترین نقاط در تصاویر AFM کامپوزیت به‌دلیل وجود تجمع یافتگی‌های GO در ساختار کامپوزیت و استحکام ساختاری بیشتر آمیزه کامپوزیتی، بیشتر از نمونه EPDM خالص بوده است.

مقادیر R_{sk} کمتر از ۱۰ نمایانگر تعداد کم پیک‌ها در سطح شکست مطالعه‌شده است. افزون بر این، مقادیر R_{ku} بیشتر از ۳۰ نشان‌دهنده توزیع باریک ارتفاع در سطح مطالعه‌شده است. بنابراین، کامپوزیت EPDM/GO (۳ phr) دارای سطح صاف با توزیع ارتفاع پیک باریک روی سطح است (جدول ۳). این نتایج با نمای سطح سه‌بعدی کامپوزیت در شکل ۶ همخوانی دارد. افزون بر این، وجود GO در ساختار کامپوزیت موجب تغییر توزیع ارتفاع پیک ماتریس EPDM از پهن به باریک در شکل‌های ۵ و ۶ شده است.

لاستیکی را حفظ می‌کند، بلکه خواص کشسانی را نیز بهبود می‌بخشد. این موضوع به‌طور مستقیم به برهم‌کنش‌های بین‌سطحی میان GO و درشت‌مولکول‌های EPDM وابسته است. افزون بر این، ارتباط واضحی بین رفتار سطحی و عملکرد مکانیکی نمونه‌ها دیده شد.

یافت. همچنین، تصاویر AFM و نتایج مقاومت در برابر سایش برای مطالعه رفتار سطحی کامپوزیت دارای ۳ phr از GO در مقایسه با EPDM خالص استفاده شد. به‌طور کلی، مشاهدات حاکی از آن بود که افزودن GO به ماتریس EPDM نه تنها ویژگی‌های الاستومری ماتریس

مراجع

1. Fu X., Lin J., Liang Z., Yao R., Wu W., Fang Z., Zou W., Wu Z., Ning H., and Peng J., Graphene Oxide as a Promising Nanofiller for Polymer Composite, *Surf. Interfaces*, **37**, 102747, 2023.
2. Vickery W.M., Lee K., Lee S.M., Orlando J.D., and Sydlik S.A., Plastic Composites from Repurposed Poly(ethylene terephthalate) Wasted Functionalized Graphene Oxide through Dynamic Depolymerization, *ACS Appl. Nano Mater.*, **7**, 3691-3701, 2024.
3. Pinto G.M., Cremonuzzi J.M.O., Ribeiro H., Andrade R.J.E., Demarquette N.R., and Fechine G.J.M., From Two-Dimensional Materials to Polymer Nanocomposites with Emerging Multifunctional Applications: A Critical Review, *Polym. Compos.*, **44**, 1438-1470, 2023.
4. Allahbakhsh A. and Mazinani S., Influences of Sodium Dodecyl Sulfate on Vulcanization Kinetics and Mechanical Performance of EPDM/Graphene Oxide Nanocomposites, *RSC Adv.*, **5**, 46694-46704, 2015.
5. Gadtya A.S., Tripathy D., Rout L., and Moharana S., Graphene Oxide, It's Surface Functionalisation, Preparation and Properties of Polymer-Based Composites: A Review, *Compos. Interfaces*, **31**, 29-76, 2023.
6. Allahbakhsh A., Yari S., Safari M., and Dubal D.P., Poly(ethylene disulfide)/Graphene Oxide Nanocomposites: Dynamic-Mechanical and Electrochemical Properties, *Eur. Polym. J.*, **130**, 109694, 2020.
7. Sun X., Huang C., Wang L., Liang L., Cheng Y., Fei W., and Li Y., Recent Progress in Graphene/Polymer Nanocomposites, *Adv. Mater.*, **33**, 2001105, 2020.
8. Allahbakhsh A., Sharif F., Mazinani S., and Kalae M.R., Synthesis and Characterization of Graphene Oxide in Suspension and Powder Forms by Chemical Exfoliation Method, *Int. J. Nano Dimens.*, **5**, 11-20, 2014.
9. Allahbakhsh A., Sharif F., and Mazinani S., The Influence of Oxygen-Containing Functional Groups on the Surface Behavior and Roughness Characteristics of Graphene Oxide, *Nano*, **08**, 1350045, 2013.
10. Farahani A., Jamshidi M., and Foroutan M., Effects of Functionalization and Silane Modification of Hexagonal Boron Nitride on Thermal/Mechanical/Morphological Properties of Silicon Rubber Nanocomposite, *Sci. Rep.*, **13**, 11915, 2023.
11. Yang B., Ginsburg S., Li W., Vilela M.M., Shahmohammadi M., Takoudis C.G., and Wu C.D., Effect of Nano-Ceramic Coating on Surface Property and Microbial Adhesion to Poly(methyl methacrylate), *J. Biomed. Mater. Res. B*, **111**, 1480-1487, 2023.
12. Zhang K., Liu K., Gao T., Liu X., and Ye J., The Effects of Initial and In-Situ Generated Roughness on Polymer Wear: Voluntary vs. Involuntary, *Wear*, **544-545**, 205299, 2024.
13. Allahbakhsh A., Mazinani S., Kalae M.R., and Sharif F., Cure Kinetics and Chemorheology of EPDM/Graphene Oxide Nanocomposites, *Thermochim. Acta*, **563**, 22-32, 2013.
14. Sundaravadivel G., Venkataraman S.R., Vishvanathperumal S., and Navaneethkrishnan V., Influence of APTES Modified HNTs on Properties of NR/EPDM Nanocomposites, *Silicon*, **15**, 6715-6727, 2023.
15. Allahbakhsh A., Jarrahi Z., Farzi G., and Shavandi A., Solar-Powered and Antibacterial Water Purification via Cu-BTC-Embedded Reduced Graphene Oxide Nanocomposite Aerogels, *Chem. Eng. J.*, **467**, 143472, 2023.
16. Allahbakhsh A., Jarrahi Z., Farzi G., and Shavandi A., Three-Dimensional Nanoporous Cu-BTC/Graphene Oxide Nanocomposites with Engineered Antibacterial Properties Synthesized via a One-Pot Solvasonication Process, *Mater. Chem. Phys.*, **277**, 125502, 2022.
17. Nazari N., Allahbakhsh A., and Bahramian A.R., Analytical Effective Thermal Conductivity Model for Colloidal Porous Composites and Nanocomposites Based on Novolac/Graphene Oxide Aerogels, *Int. J. Energy Res.*, **46**, 16608-16628, 2022.
18. Ahmadi S.J., Huang Y., and Li W., Fabrication and Physical

Properties of EPDM-Organoclay Nanocomposites, *Compos. Sci. Technol.*, **65**, 1069-1076, 2005.

and Properties of EPDM/Organomontmorillonite Hybrid Nanocomposites, *Polym. Int.*, **51**, 319-324, 2002.

19. Chang Y.W., Yang Y., Ryu S., and Nah C., Preparation

